

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant : Satoshi Seo et al. Art Unit : Unknown
Serial No. : New Application Examiner : Unknown
Filed : July 21, 2003
Title : MATERIAL FOR AN ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND
ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT USING THE SAME

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT UNDER 35 USC §119

Applicants hereby confirm their claim of priority under 35 USC §119 from the following application:

Japan Application No. 2002-222451 filed July 31, 2002

A certified copy of the application from which priority is claimed is submitted herewith.

Please apply any charges or credits to Deposit Account No. 06-1050.

Respectfully submitted,

Date: July 21, 2003



John F. Hayden
Reg. No. 37,640

Fish & Richardson P.C.
1425 K Street, N.W.
11th Floor
Washington, DC 20005-3500
Telephone: (202) 783-5070
Facsimile: (202) 783-2331

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 7月31日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-222451

[ST.10/C]:

[JP 2002-222451]

出 願 人

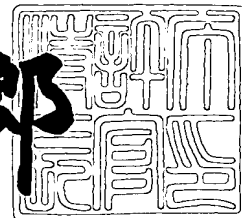
Applicant(s):

株式会社半導体エネルギー研究所

2003年 5月27日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3040246

【書類名】 特許願

【整理番号】 P006524

【提出日】 平成14年 7月31日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

 【氏名】 瀬尾 哲史

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

 【氏名】 山崎 寛子

【特許出願人】

 【識別番号】 000153878

 【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所

 【代表者】 山崎 舜平

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 002543

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 図面 1

 【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】明細書

【発明の名称】電界発光素子用材料、およびそれを用いた電界発光素子

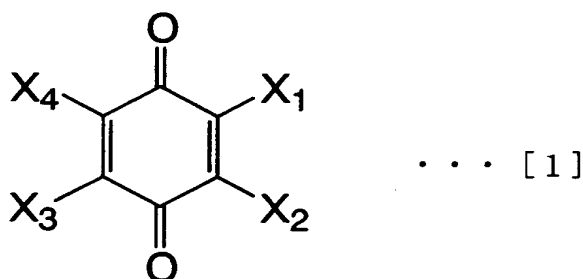
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔1〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔1〕

【化 1】



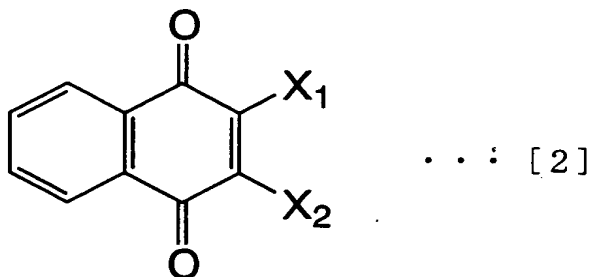
(X 1 ~ X 4 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはシアノ基)

【請求項 2】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔2〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔2〕

【化 2】



(X 1 ~ X 2 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはシアノ基)

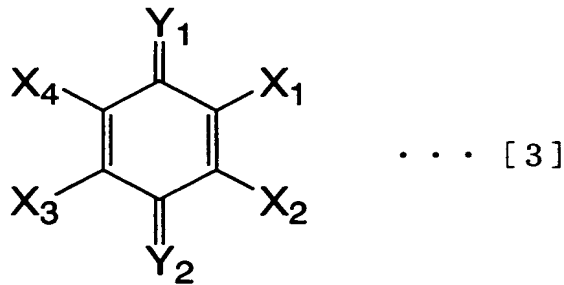
【請求項 3】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔3〕で示さ

れる化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔3〕

【化 3】



(X 1 ~ X 4 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはアルキル基
Y 1 ~ Y 2 ; ジシアノメチレン基、またはシアノイミノ基)

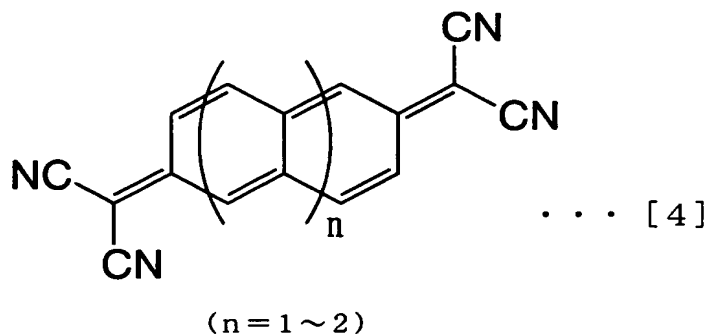


【請求項 4】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔4〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔4〕

【化 4】



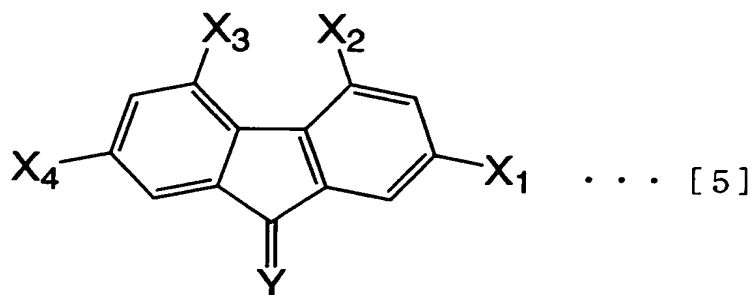
【請求項 5】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔5〕で示さ

れる化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔5〕

【化5】



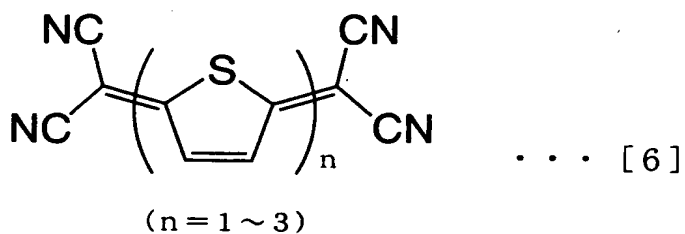
(X 1 ~ X 4 ; 水素原子、またはニトロ基基
Y ; 酸素原子、またはジシアノメチレン基)

【請求項6】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔6〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔6〕

【化6】

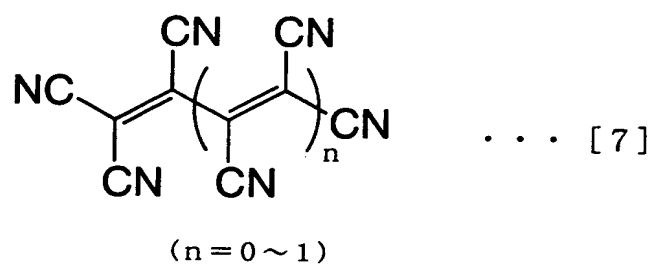


【請求項7】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔7〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔7〕

【化 7】

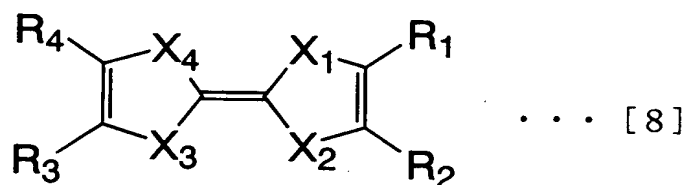


【請求項 8】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔8〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔8〕

【化 8】



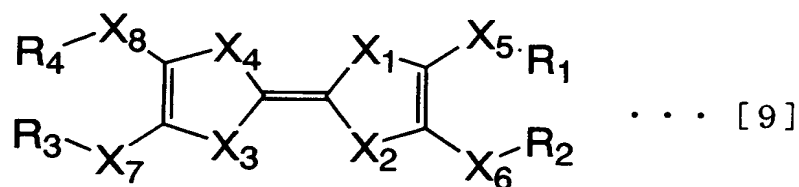
(X 1 ~ X 4 ; S、Se、またはTe
R 1 ~ R 4 ; 水素原子、またはアルキル基
また、R 1 と R 2、あるいは R 3 と R 4 は互いに結合し、
アルキレン鎖からなる環または縮合環を形成してもよい)

【請求項 9】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔9〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔9〕

【化 9】



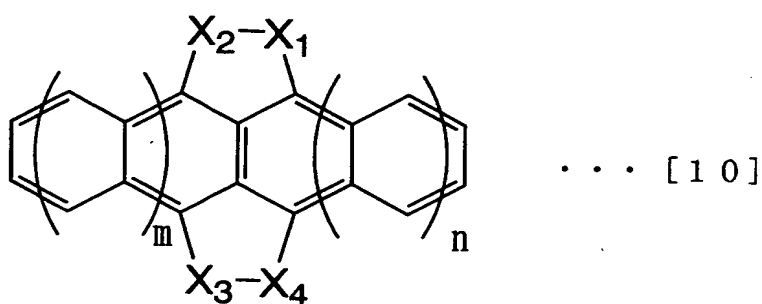
(X 1 ~ X 8 ; S、Se、またはTe
R 1 ~ R 4 ; 水素原子、またはアルキル基
また、R 1 と R 2、あるいは R 3 と R 4 は互いに結合し、
アルキレン鎖からなる環またはオレフィン二重結合を含む環
を形成してもよい)

【請求項 10】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔10〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔10〕

【化 10】



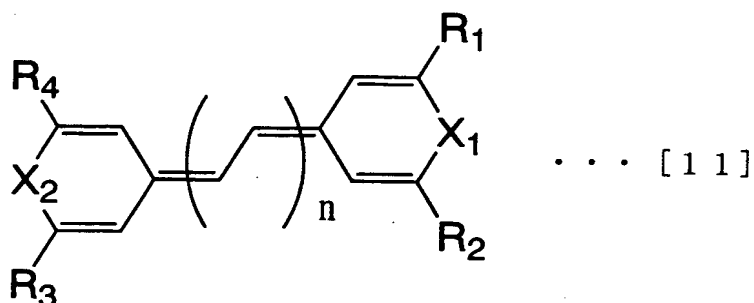
(X 1 ~ X 4 ; S、Se、またはTe
n, m=0~1)

【請求項 11】

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔11〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料。

一般式〔11〕

【化 1 1】



(X 1 ~ X 2 ; S, Se, または Te
R 1 ~ R 4 ; 水素原子、アルキル基、またはアリール基
n = 0 ~ 1)

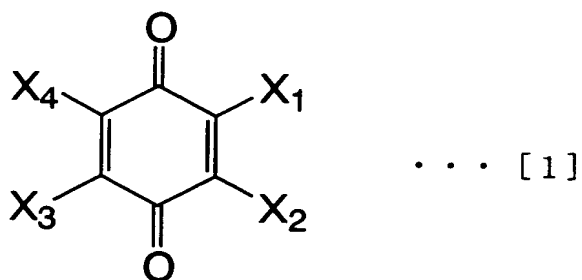
【請求項 1 2】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔1〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔1〕

【化 1 2】



(X 1 ~ X 4 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはシアノ基)

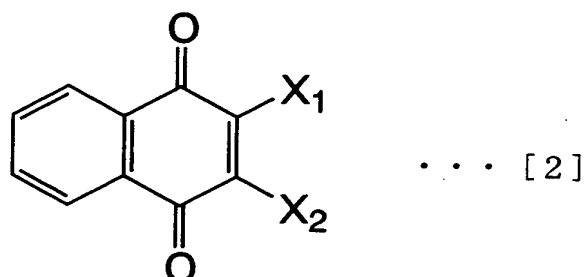
【請求項 1 3】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔2〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔2〕

【化 1 3】



(X 1 ~ X 2 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはシアノ基)

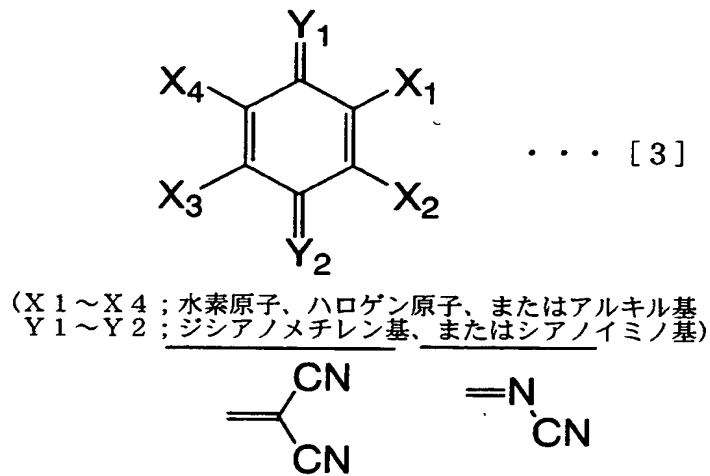
【請求項 1 4】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔3〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔3〕

【化 1 4】



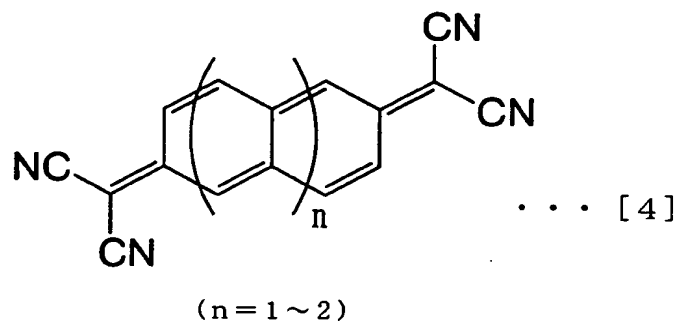
【請求項 1 5】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔4〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔4〕

【化 1 5】



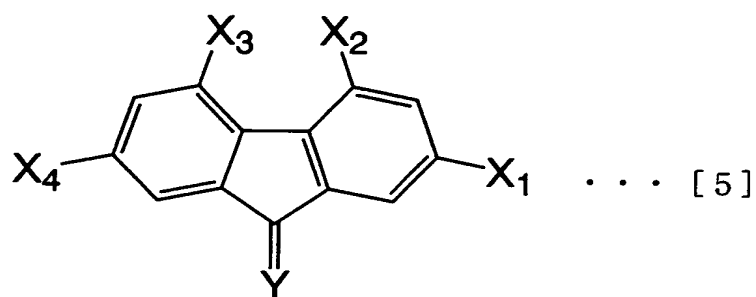
【請求項 1 6】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔5〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔5〕

【化 1 6】



(X 1 ~ X 4 ; 水素原子、またはニトロ基
Y ; 酸素原子、またはジシアノメチレン基)

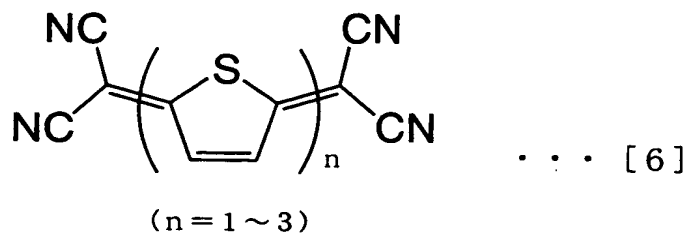
【請求項 1 7】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔6〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔6〕

【化 1 7】



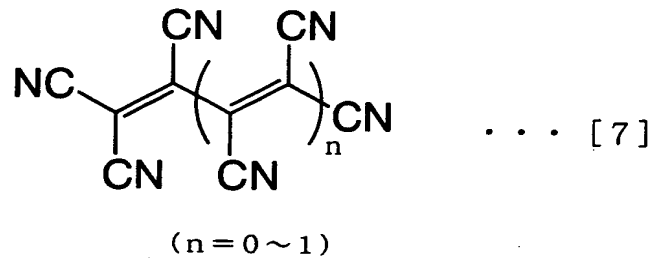
【請求項 1 8】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔7〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔7〕

【化 1 8】



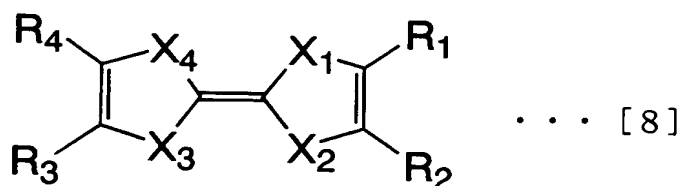
【請求項 1 9】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陰極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔8〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔8〕

【化 19】



(X 1 ~ X 4 ; S、Se、またはTe
R 1 ~ R 4 ; 水素原子、またはアルキル基
また、R 1 と R 2、あるいは R 3 と R 4 は互いに結合し、
アルキレン鎖からなる環または縮合環を形成してもよい)

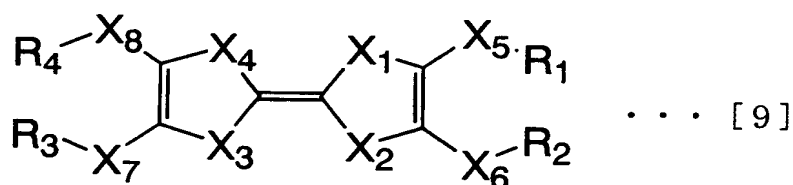
【請求項 20】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陰極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔9〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔9〕

【化 20】



(X 1 ~ X 8 ; S、Se、またはTe
R 1 ~ R 4 ; 水素原子、またはアルキル基
また、R 1 と R 2、あるいは R 3 と R 4 は互いに結合し、
アルキレン鎖からなる環またはオレフィン二重結合を含む環
を形成してもよい)

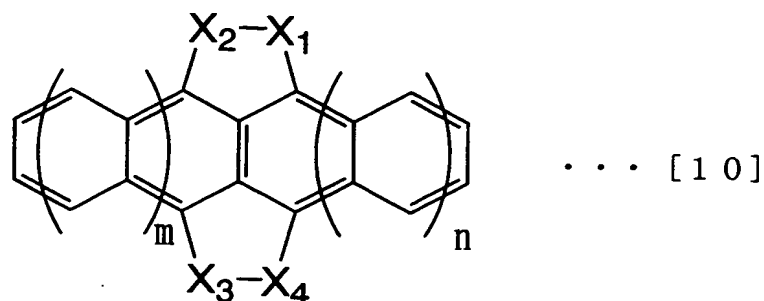
【請求項 21】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陰極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔10〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔10〕

【化21】



(X1~X4; S, Se, またはTe
n, m=0~1)

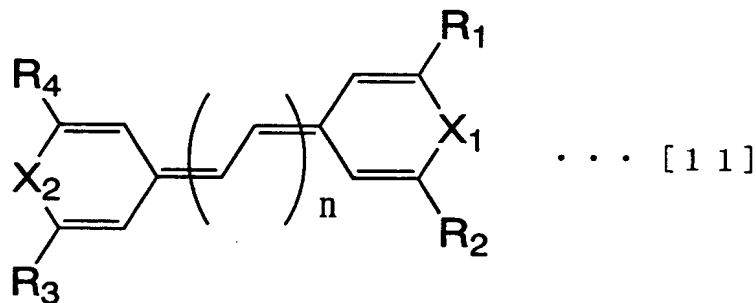
【請求項22】

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって

前記陰極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物、および下記一般式〔11〕で示される化合物とからなる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子。

一般式〔11〕

【化22】



(X1~X2; S, Se, またはTe
R1~R4; 水素原子、アルキル基、またはアリール基
n=0~1)

【請求項23】

請求項1乃至請求項22のいずれか一において、

前記主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物がレドックス性を有することを特徴とする電界発光素子用材料。

【請求項 2 4】

請求項 1 乃至請求項 2 3 のいずれか一において、
前記主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物は、エメラルディン状態のポリアニリンであることを特徴とする電界発光素子用材料。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、一对の電極間に有機化合物を含む膜（以下、「電界発光膜」と記す）を設けた素子に電界を加えることで、蛍光又は燐光が得られる電界発光素子に関する。特に導電性の高分子材料（電界発光素子用材料）をその一部に用いた電界発光素子に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

自発光、薄型軽量、高速応答性、直流低電圧駆動などの特徴を有する材料を発光体として用いた電界発光素子は、次世代のフラットパネルディスプレイ、特に携帯機器への応用が期待されている。なお、電界発光素子をマトリクス状に配置した発光装置は、従来の液晶表示装置と比較して、視野角が広く視認性が優れる点に優位性があると考えられている。

【0 0 0 3】

電界発光素子の発光機構は、一对の電極間に電界発光膜を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陽極から注入された正孔が電界発光膜中の発光中心で再結合して分子励起子を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光するといわれている。励起状態には一重項励起と三重項励起が知られ、発光はどちらの励起状態を経ても可能であると考えられている。

【0 0 0 4】

このような発光装置を携帯機器に応用する場合において、低消費電力が要求さ

れるため、電界発光素子の駆動電圧を低減することは重要な課題の1つである。

【0005】

これまで駆動電圧を低減させるための手法として、バッファ層を電極と電界発光膜との界面に設けるという試みがなされている。バッファ層には、低分子系材料を用いた場合と高分子系（ポリマー系）材料を用いた場合とがあり、具体的には低分子系では、陽極との界面に銅フタロシアニン（Cu-Pc）、m-MTDATAに代表されるスターバーストアミンと呼ばれる高分子量アリアルアミン（文献1：Y.Shirota,Y.Kuwabara,H.Inada,T.Wakimoto,H.Nakada,Y.Yonemoto,S.Kawami and K.Imai.:Appl.Phys.Lett.,65,807(1994)）を用いたバッファ層を設けるという報告がなされている。なお、これらの材料はHOMO準位が高く、陽極を形成する電極材料の仕事関数に近い値を有するので正孔（ホール）の注入障壁を小さくすることができる。

【0006】

また、高分子系では、ポリエチレンジオキシチオフェン（PEDOT）（文献2：J.M.Bharathan and Y.Yang:Appl.Phys.Lett.,72,2660(1998)）を陽極との界面にバッファ層として用いた例が報告されている。なお、PEDOTには、通常、ポリスチレンスルホン酸（PSS）がドーピングされており、導電性高分子として機能する導電性を有している。

【0007】

なお、高分子系の場合においては、電極との接合面積の大きい導電性高分子からなるバッファ層を設けることで、バッファ層を介して電極上に形成される発光層との密着性が増し、正孔注入効率を向上させることができるので、結果的に駆動電圧を低下させることができる。

【0008】

また、最近では、高分子系材料であるトリフェニルアミン誘導体にルイス酸として機能する無機材料を作用させ、ラジカルカチオンを形成し、導電性を高めた層を電極との界面に用いるという方法も報告されている（文献3：A.Yamamori,C.Adachi,T.Koyama and Y.Taniguchi:Appl.Phys.Lett.,72,2147(1998)）。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

高分子系材料は、低分子系材料よりも取り扱いが容易で耐熱性が高いことから、バッファ層の形成において好ましい材料であるが、高分子系材料として P E D O T を用いる場合には、導電性を得るためのドーパントとして有機スルホン酸を用いるため、溶媒として水を用いることが必須条件となっている。

【0 0 1 0】

しかし、通常、電界発光素子は水によって著しい劣化を受けることが知られていることから、素子の信頼性向上のためには水を溶媒とすることなく高分子系材料を用いたバッファ層の作製が要求される。

【0 0 1 1】

なお、高分子系材料に導電性を与えるためには、上述したように無機材料をドーパントとする方法があるが、この場合には、アンチモン (S b) 等の環境に対して有害な物質を用いる必要があり、産業上好ましくない。

【0 0 1 2】

そこで、本発明では、従来のバッファ層に用いた高分子系材料とは異なり、水を溶媒とせずバッファ層を形成することができる環境に優しい電界発光素子用材料を提供し、さらにこのような電界発光素子用材料を用いることにより電極からのキャリアの注入性を向上させ、素子の駆動電圧を低減させると共に信頼性を高めることが可能な電界発光素子を提供することを目的とする。

【0 0 1 3】

【課題を解決するための手段】

そこで、本発明者は、上記課題を解決するために図 1 (A) に示すような第 1 の電極 1 0 1、バッファ層 1 0 2、電界発光膜 1 0 3、および第 2 の電極を有する電界発光素子において、第 1 の電極 1 0 1 上に形成されるバッファ層 1 0 2 を形成する材料として有機溶媒に可溶で、主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物（いわゆる共役系高分子）と、有機溶媒に可溶で、なおかつ前記高分子化合物に対してアクセプター性またはドナー性を有する化合物とを含む導電性の材料を用いることを考えた。

【0 0 1 4】

なお、本発明におけるバッファ層 1 0 2 の作製において、有機溶媒に可溶なアクセプター性またはドナー性を有する化合物としては、非プロトン性、または中性の化合物を用いることが特徴である。また、共役系高分子化合物としては、有機溶媒に溶解すれば何でも良いが、特にアクセプター性の化合物、もしくはドナー性の化合物のいずれかをドーピングすることにより陽極からの正孔（ホール）の注入性、もしくは陰極からの電子の注入性の高いバッファ層の両方が形成可能となるレドックスポリマー（酸化還元性高分子）を用いることが好ましい。

【 0 0 1 5 】

なお、上記有機溶媒に可溶であり、主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物（共役系高分子）には、構造単位の繰返しの数（重合度）が 2 ～ 2 0 程度の低重合体（オリゴマー）を含むこととする。

【 0 0 1 6 】

ここで、本発明のバッファ層 1 0 2 において生じる反応を図 1（B）に示す。なお、バッファ層 1 0 2 が共役系高分子とアクセプター性の化合物（図中では、アクセプターと略す）からなる場合には、アクセプター性の化合物により共役系高分子中の電子が引き抜かれ、その結果、共役系高分子がキャリア（ホール）として存在することになる。つまり、この場合には、バッファ層 1 0 2 と接して形成される電極は陽極となる。一方、バッファ層 1 0 2 が共役系高分子とドナー性の化合物（図中では、ドナーと略す）からなる場合には、ドナー性の化合物により共役系高分子に対して電子が与えられ、その結果、共役系高分子がキャリア（電子）として存在することになる。つまり、この場合には、バッファ層 1 0 2 と接して形成される電極は陰極となる。

【 0 0 1 7 】

図 1（C）には、バッファ層 1 0 2 が共役系高分子とアクセプター性の化合物とから形成される場合の概念図を示す。この場合、第 1 の電極（陽極）1 0 1 は、共役系高分子中に存在するアクセプター準位から電子の引き抜きを行い、同時にアクセプター準位にホールをバッファ層中に注入する。なお、注入されたホールは、バッファ層における HOMO 準位に移動し、さらに、電界発光膜 1 0 3 の HOMO 準位に移動する。なお、この場合において、第 1 の電極 1 0 1 か

らバッファ層への移動は、エネルギー差がほとんどないところで行われるために容易に行われる。また、注入されたホールがアクセプター準位から電界発光膜 1 0 3 の HOMO 準位へ移動する場合も直接第 1 の電極 1 0 1 から注入される場合に比べてエネルギー差が緩和されているので、第 1 の電極からのホールの注入性を向上させることができる。

【 0 0 1 8 】

また、図 1 (D) には、バッファ層 1 0 2 が共役系高分子とドナー性の化合物とから形成される場合の概念図を示す。この場合、第 1 の電極（陰極） 1 0 1 から共役系高分子中に存在するドナー準位に電子の注入が行われる。なお、注入された電子は、バッファ層 1 0 2 における LUMO 準位に移動し、さらに、電界発光膜 1 0 3 の LUMO 準位に移動する。なお、この場合において、第 1 の電極 1 0 1 からバッファ層への移動は、エネルギー差がほとんどないところで行われるために容易に行われる。また、注入された電子がバッファ層 1 0 2 における LUMO 準位から電界発光膜 1 0 3 の LUMO 準位へ移動する場合も直接第 1 の電極 1 0 1 から注入される場合に比べてエネルギー差が緩和されているので第 1 の電極からの電子の注入性を向上させることができる。

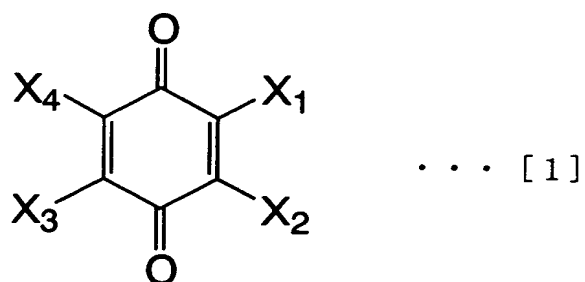
【 0 0 1 9 】

本発明の構成は、

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物と、下記一般式〔1〕～〔7〕で示されるアクセプター性を有する化合物のうちのいずれか一とを組み合わせる電界発光素子用材料である。

一般式〔1〕

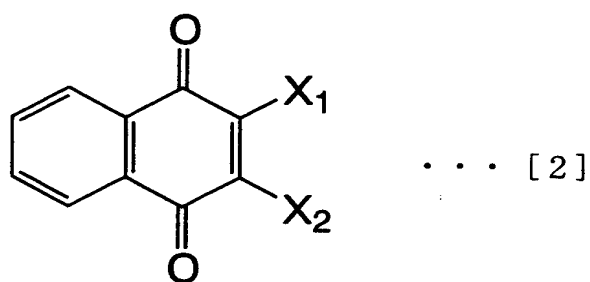
【化 2 3】



(X 1 ~ X 4 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはシアノ基)

一般式 [2]

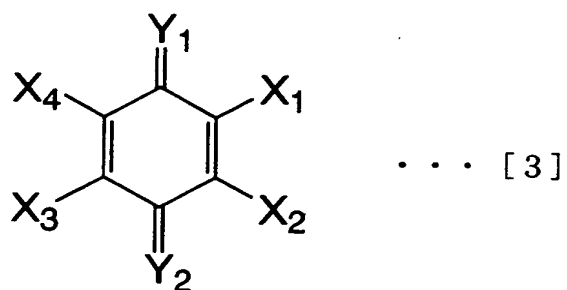
【化 2 4】



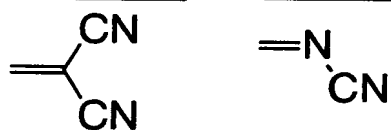
(X 1 ~ X 2 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはシアノ基)

一般式 [3]

【化 2 5】

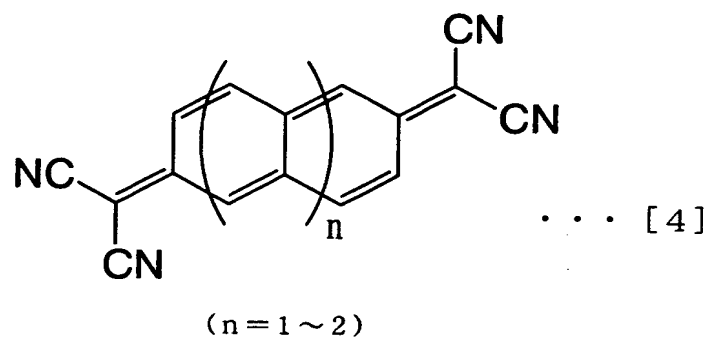


(X 1 ~ X 4 ; 水素原子、ハロゲン原子、またはアルキル基
Y 1 ~ Y 2 ; ジシアノメチレン基、またはシアノイミノ基)



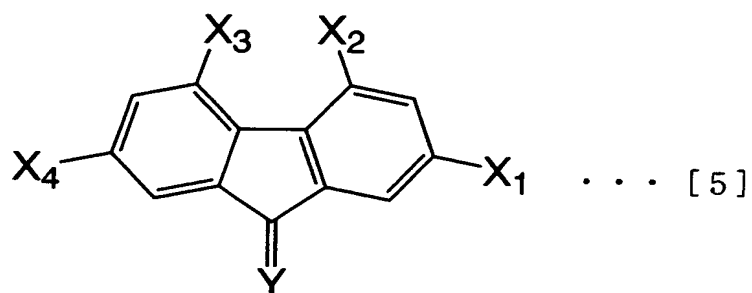
一般式 [4]

【化 2 6】



一般式 [5]

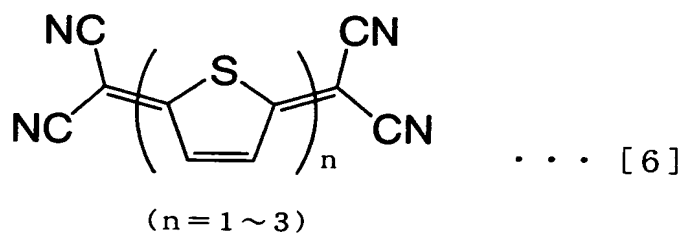
【化 27】



(X1～X4：水素原子、またはニトロ基
Y：酸素原子、またはジシアノメチレン基)

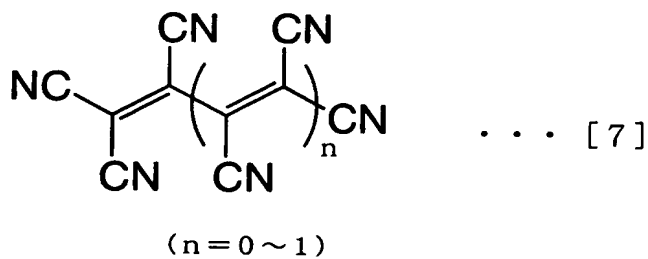
一般式 [6]

【化 28】



一般式 [7]

【化 29】



【0020】

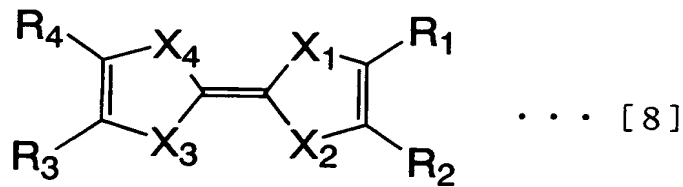
また、本発明の別の構成は、

主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物と、下記一般式 [8] ~ [11]

で示されるドナー性を有する化合物のうちのいずれか一とを組み合わせる電
界発光素子用材料である。

一般式〔8〕

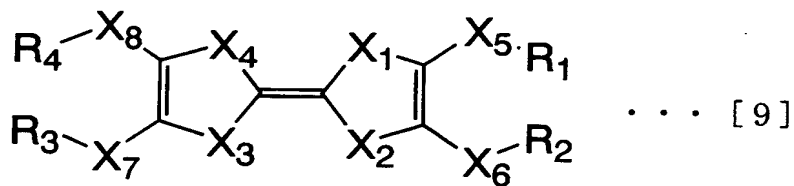
【化 3 0】



(X 1 ~ X 4 ; S、Se、またはTe
R 1 ~ R 4 ; 水素原子、またはアルキル基
また、R 1 と R 2、あるいは R 3 と R 4 は互いに結合し、
アルキレン鎖からなる環または縮合環を形成してもよい)

一般式〔9〕

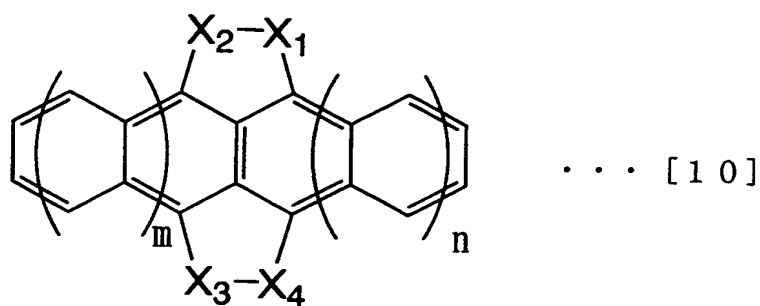
【化 3 1】



(X 1 ~ X 8 ; S、Se、またはTe
R 1 ~ R 4 ; 水素原子、またはアルキル基
また、R 1 と R 2、あるいは R 3 と R 4 は互いに結合し、
アルキレン鎖からなる環またはオレフィン二重結合を含む環
を形成してもよい)

一般式〔10〕

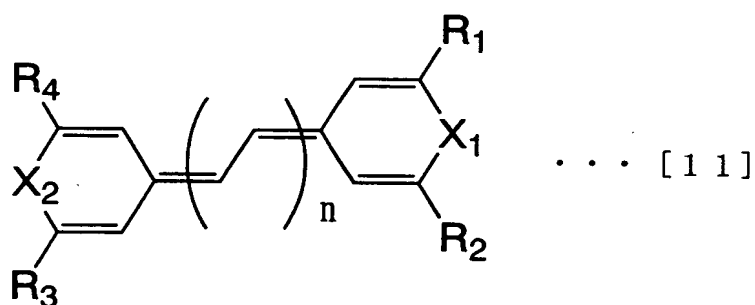
【化 3 2】



(X1 ~ X4 ; S, Se, または Te
n, m = 0 ~ 1)

一般式 [11]

【化 3 3】



(X1 ~ X2 ; S, Se, または Te
R1 ~ R4 ; 水素原子、アルキル基、またはアリール基
n = 0 ~ 1)

【0021】

さらに本発明の別の構成は、

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって、

前記陽極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物と、上記一般式〔1〕～〔7〕で示されるアクセプター性を有する化合物のうちのいずれか一とを組み合わせる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子である。

【0022】

さらに本発明の別の構成は、

陽極、バッファ層、電界発光層、および陰極を有する電界発光素子であって、

前記陰極と接して形成される前記バッファ層に主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物と、上記一般式〔8〕～〔11〕で示されるドナー性を有する化合物のうちのいずれか一とを組み合わせる電界発光素子用材料を用いたことを特徴とする電界発光素子である。

【0023】

【発明の実施の形態】

以下に、本発明の実施の形態について説明する。

（実施の形態1）

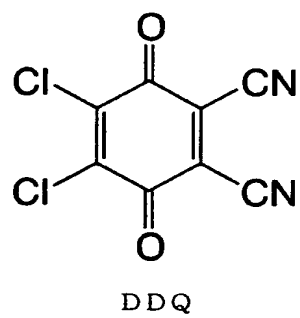
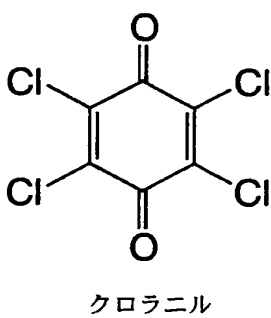
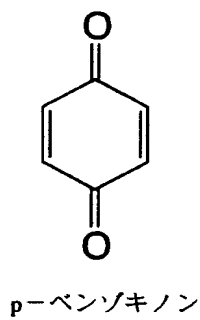
本実施の形態1においては、図2に示すように第1の電極上にバッファ層202が形成され、バッファ層202の上には、電界発光膜203および第2の電極204がそれぞれ形成される場合であって、バッファ層202は、本明細書中の課題を解決するための手段で示したように主鎖、または側鎖に共役を含む化合物（以下、共役系高分子という）と、アクセプター性を有する一般式〔1〕で示されるパラベンゾキノン誘導体、一般式〔2〕で示されるナフトキノン誘導体、一般式〔3〕で示されるテトラシアノキノジメタン誘導体またはジシアノキノジイミン誘導体、一般式〔4〕で示される化合物、一般式〔5〕で示される化合物、一般式〔6〕で示される化合物、または一般式〔7〕で示される化合物のうちのいずれか一とを組み合わせることを特徴とする。

【0024】

なお、一般式〔1〕～〔7〕で示されるアクセプター性を有する化合物の具体例について、以下の化学式（A1）～（A8）にそれぞれ示す。

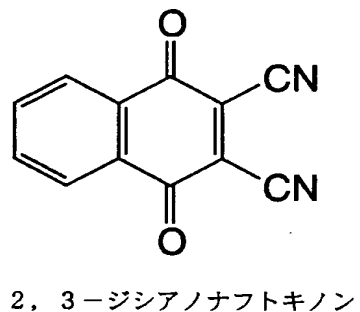
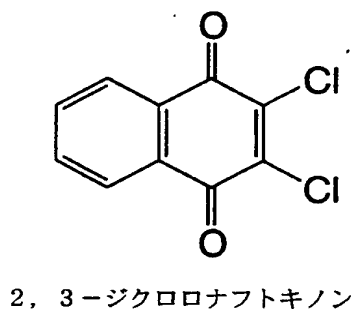
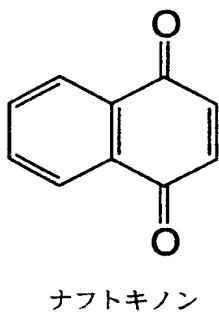
【化 3 4】

(A 1 ベンゾキノン誘導体)



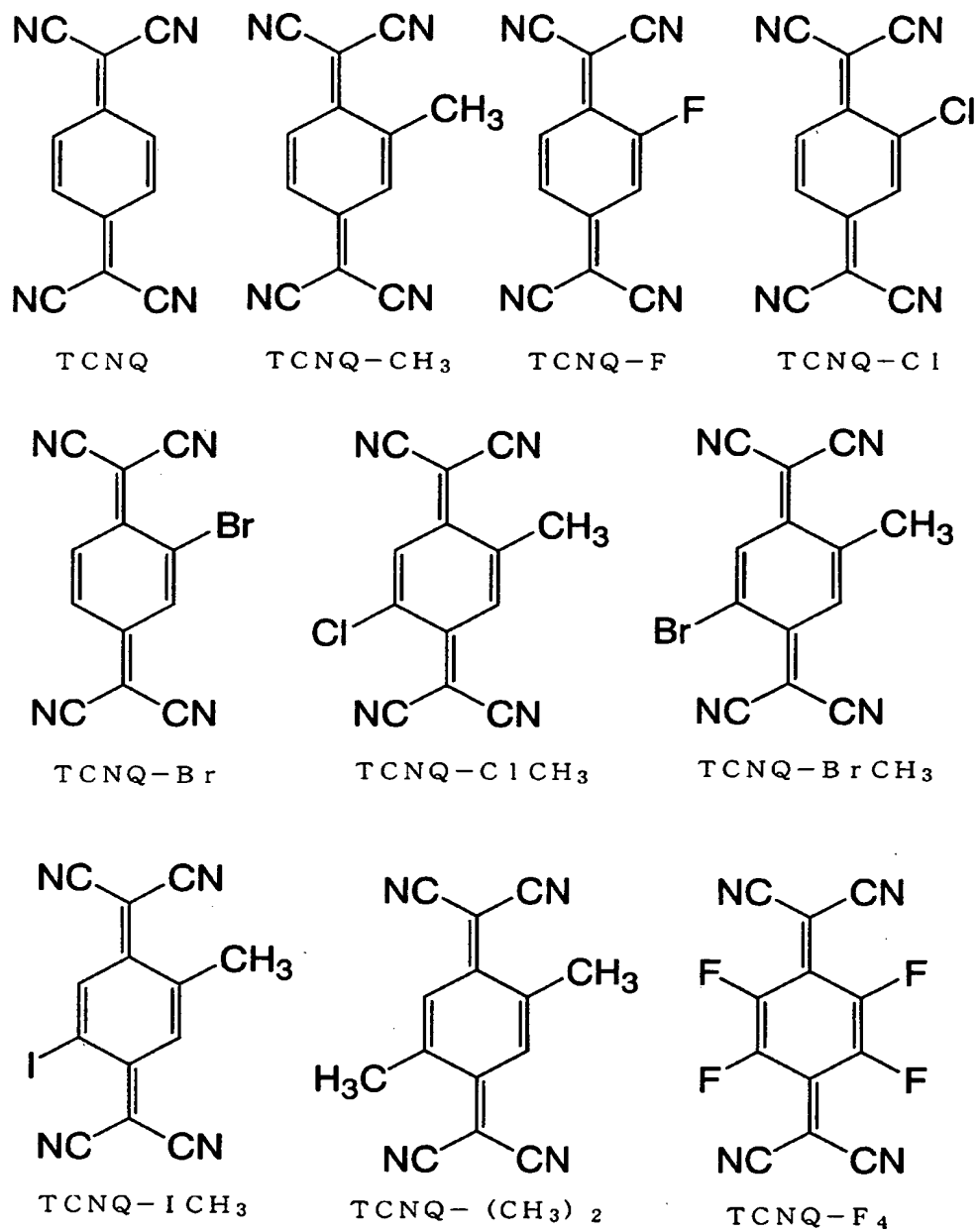
【化 3 5】

(A 2 ナフトキノン誘導体)



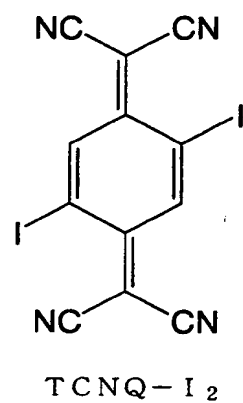
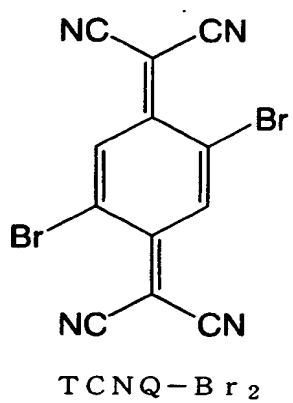
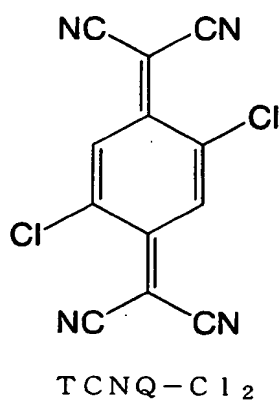
【化 36】

(A3 テトラシアノキノジメタン誘導体)



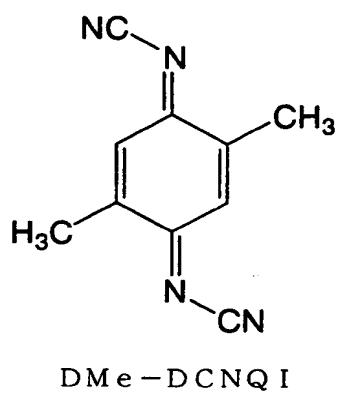
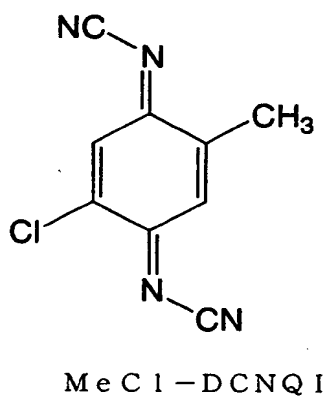
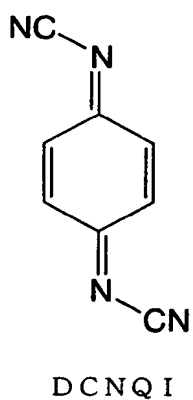
【化 37】

(A3 続き)



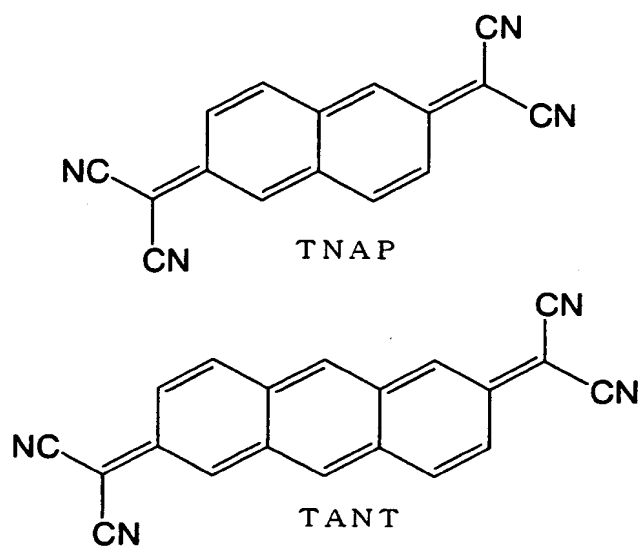
【化 38】

(A4 ジシアノキノジイミン誘導体)



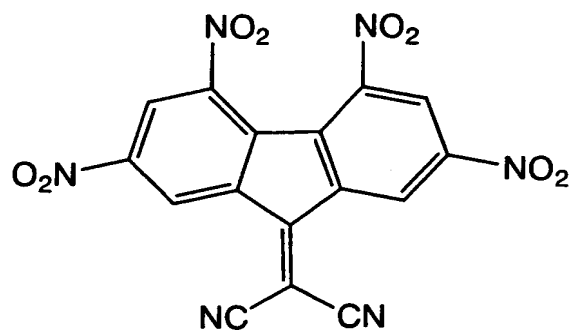
【化 3 9】

(A 5)

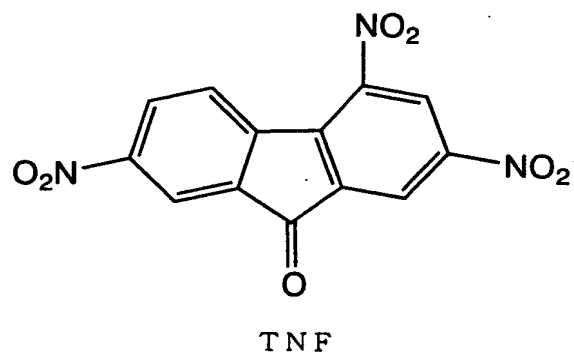
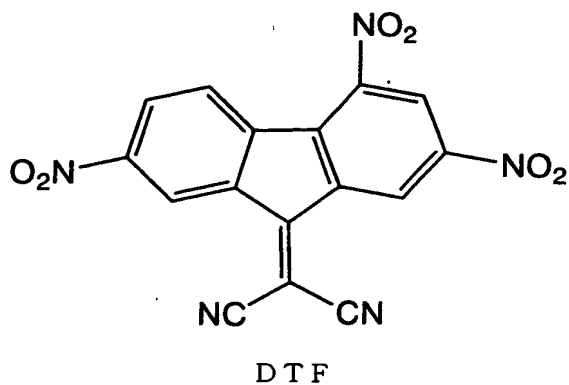


【化 40】

(A6)

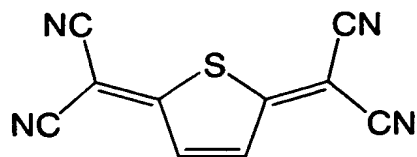


2-(2,4,5,7-Tetranitro-fluoren-9-ylidene)-malononitrile

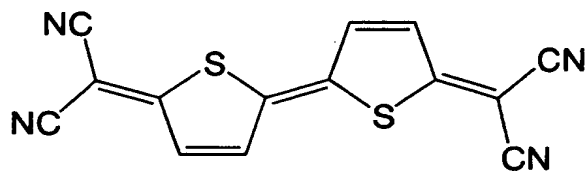


【化 4 1】

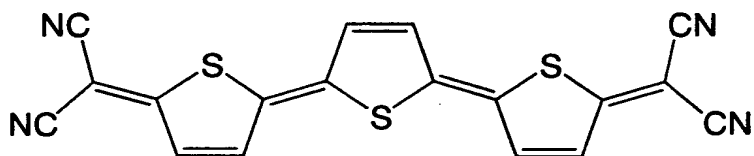
(A 7)



TCN-T 1



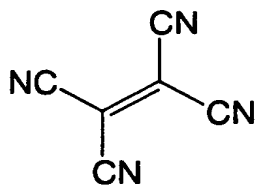
TCN-T 2



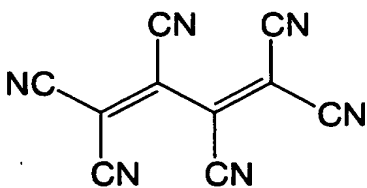
TCN-T 3

【化 4 2】

(A 8)



TCNE



TCNBD

【0 0 2 5】

なお、本実施の形態 1 の場合には、バッファ層 2 0 2 は、アクセプター性を有する材料で形成されるので、第 1 の電極 2 0 1 は陽極として機能する。また、

第 1 の電極 2 0 1 は陽極として機能する電極であるため、仕事関数の大きい陽極材料で形成されるのが好ましいが、バッファ層 2 0 2 の形成により正孔（ホール）の注入性が向上しているため、必ずしも仕事関数の大きい材料を用いる必要はない。

【 0 0 2 6 】

しかし、ここでは素子特性をより向上させるために第 1 の電極 2 0 1 を形成する陽極材料として酸化インジウム・スズ（ITO: indium tin oxide）からなる透明性導電膜を用いることとする（図 2（B））。

【 0 0 2 7 】

次に、第 1 の電極 2 0 1 上にバッファ層 2 0 2 が形成される。なお、バッファ層 2 0 2 を形成する材料としては、先に示した材料を組み合わせる用いることができるが、ここでは、図 2（B）に示すように共役系高分子としてエメラルディン・ベース・ポリアニリン（以下、EB-PAni と示す）を用い、アクセプター性分子としてテトラシアノキノジメタン（以下、TCNQ）を用い、20～50 nm（好ましくは 30 nm）の膜厚で形成される。

【 0 0 2 8 】

次に、バッファ層 2 0 2 上に電界発光膜 2 0 3 が形成される。電界発光膜 2 0 3 は、単一の材料で形成されていても良いが、複数の材料によって形成された積層構造としても良い。

【 0 0 2 9 】

なお、積層構造の場合には、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層（ブロッキング層）、電子輸送層、電子注入層などの各機能を有する層を組み合わせ、少なくとも発光性を有する層を含む構成にすればよい。

【 0 0 3 0 】

本実施の形態 1 では、図 2（B）に示すように電界発光膜 2 0 3 を正孔輸送層 2 1 1 および電子輸送層 2 1 2 との積層構造で形成することとする。具体的には、正孔輸送層 2 1 1 は正孔輸送性の材料である 4, 4'-ビス[N-（1-ナフチル）-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル（以下、 α -NPD と示す）を 30 nm の膜厚とし、電子輸送層 2 1 2 を電子輸送性の材料であるトリス（8-キ

ノリノラト) アルミニウム (以下、 Alq_3 と示す) を 50 nm の膜厚とすることにより形成する。なお、この積層構造の場合には、電子輸送層 2 1 2 を形成する Alq_3 が発光性を有する。

【0031】

次に、電界発光膜 2 0 3 上に第 2 の電極 2 0 4 が形成される。なお、第 2 の電極 2 0 4 は陰極として機能する電極であるため仕事関数の小さい陰極材料 (具体的には、仕事関数が 3.5 eV 以下の材料) で形成される。なお、第 2 の電極 2 0 4 は、単一の材料で形成された単層構造であっても良いが、複数の材料からなる積層構造で形成されていても良い。本実施の形態 1 では、図 2 (B) に示すようにフッ化リチウム (LiF) を 2 nm 、アルミニウム (Al) を 100 nm の膜厚としたものを積層することにより陰極 2 0 4 が形成される場合について示す。なお、この場合には、 LiF を用いることにより陰極 2 0 4 の仕事関数を小さくできると共に、 Al を用いることにより陰極 2 0 4 の導電性を高めるという 2 つの機能を兼ね備えた電極形成が実現できる。なお、陰極材料としては、仕事関数の小さい公知の材料を自由に組み合わせて用いることができる。

【0032】

以上より、電界発光素子のバッファ層に、主鎖、または側鎖に共役を含む化合物 (以下、共役系高分子という) と、アクセプター性を有する一般式 [1] で示されるパラベンゾキノン誘導体、一般式 [2] で示されるナフトキノン誘導体、一般式 [3] で示されるテトラシアノキノジメタン誘導体またはジシアノキノジイミン誘導体、一般式 [4] で示される化合物、一般式 [5] で示される化合物、一般式 [6] で示される化合物、または一般式 [7] で示される化合物のうちのいずれか一とを組み合わせた材料 (電界発光素子用材料) を用いることにより、水を溶媒としないバッファ層を形成することができる。なお、このバッファ層を形成することにより電極 (本実施の形態 1 では、陽極) からのキャリア (正孔) の注入性が向上するため、素子の駆動電圧を低減させると共に信頼性の高い電界発光素子が形成される。

【0033】

(実施の形態 2)

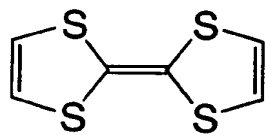
本実施の形態 2 においては、図 3 に示すように第 1 の電極 3 0 1 上にバッファ層 3 0 2 が形成され、バッファ層 3 0 2 の上には、電界発光膜 3 0 3 および第 2 の電極 3 0 4 がそれぞれ形成される場合であって、バッファ層 3 0 2 は、主鎖、または側鎖に共役を含む化合物（以下、共役系高分子という）と、ドナー性を有する一般式〔8〕で示される化合物、一般式〔9〕で示される化合物、一般式〔10〕で示される化合物、および一般式〔11〕で示される化合物のうちのいずれか一とを組み合わせ形成することを特徴とする。

【0034】

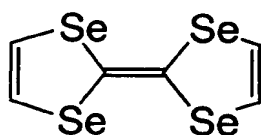
なお、上記一般式〔8〕～〔11〕で示されるドナー性を有する化合物の具体例について、以下の化学式（D1）～（D4）にそれぞれ示す。

【化 4 3】

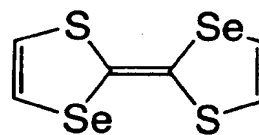
(D 1)



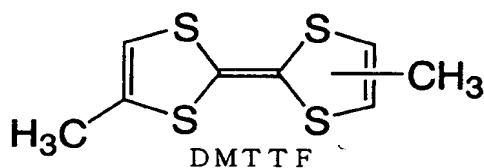
TTF



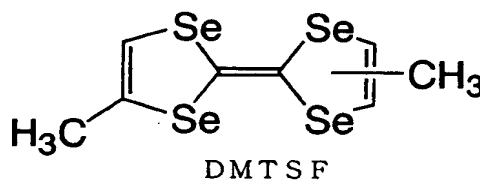
TSF



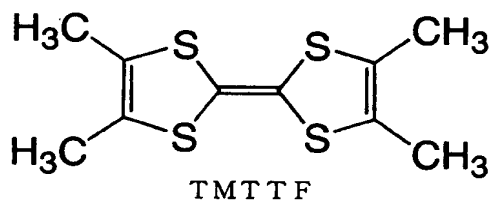
DSDTE



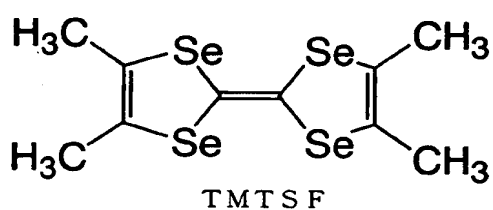
DMTTF



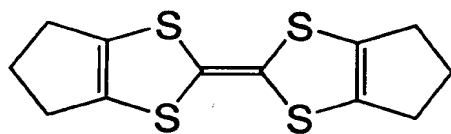
DMTSF



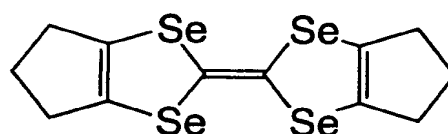
TMTTF



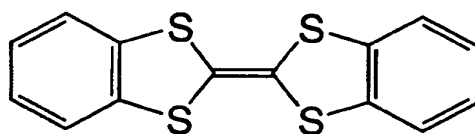
TMTSF



HMTTF



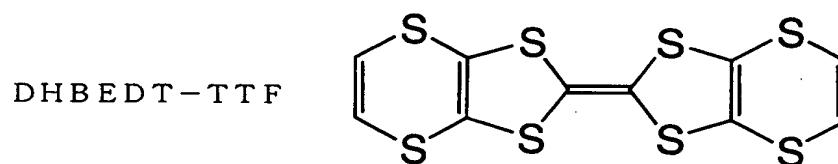
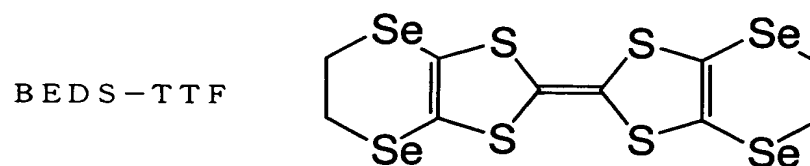
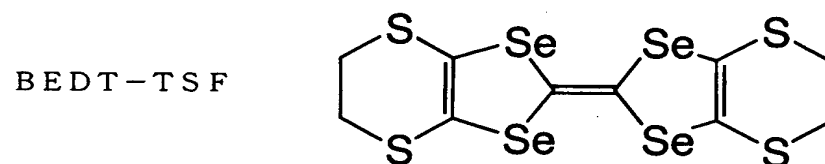
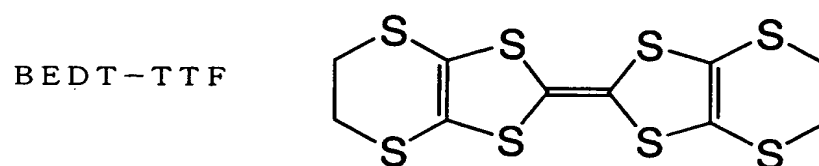
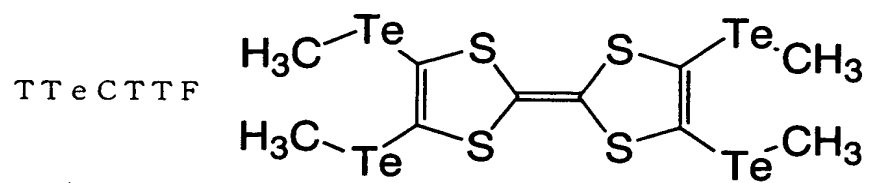
HMTSF



DBTTF

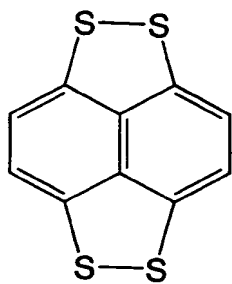
【化 4 4】

(D 2)

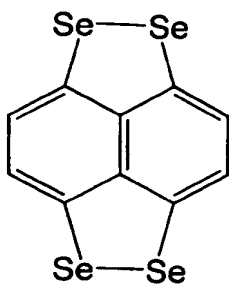


【化 45】

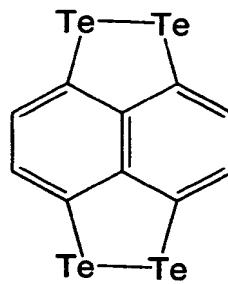
(D3)



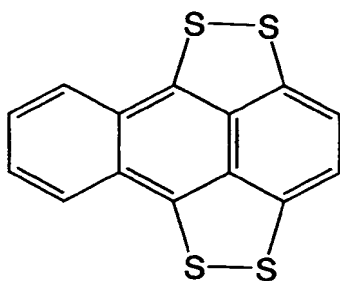
TTN



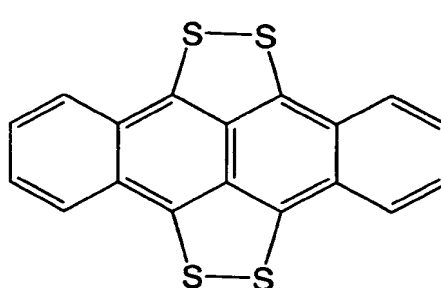
TSN



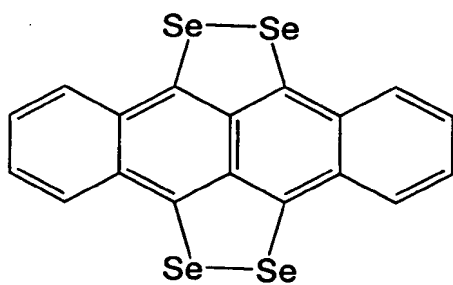
TTeN



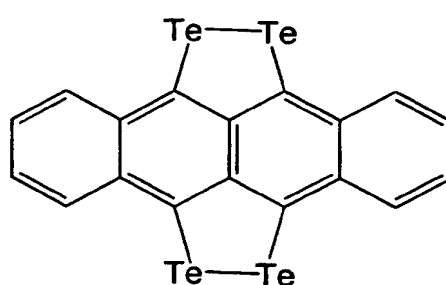
TTA



TTT



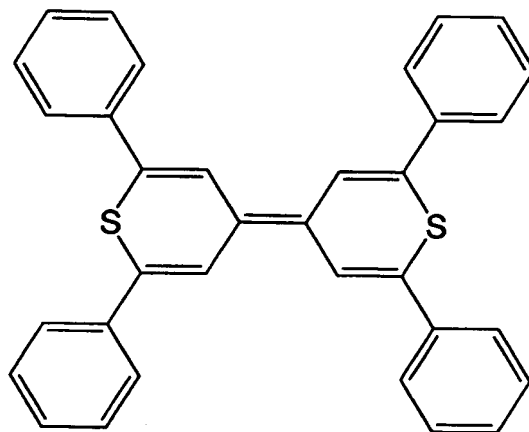
TST



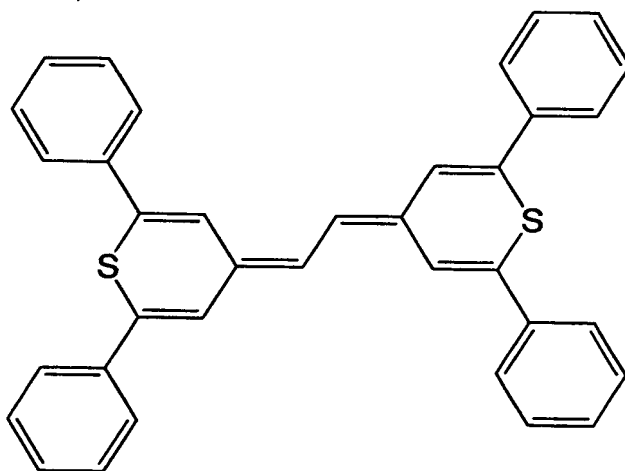
TTeT

【化 4 6】

(D 4)



B T P



【0 0 3 5】

なお、本実施の形態 2 の場合には、バッファ層 3 0 2 は、ドナー性を有する材料で形成されるので、第 1 の電極 3 0 1 は陰極として機能する。また、第 1 の電極 3 0 1 は陰極として機能する電極であるため、仕事関数の小さい陰極材料で形成されるのが好ましいが、バッファ層 3 0 2 の形成により電子の注入性が向上しているため、必ずしも仕事関数の小さい材料を用いる必要はない。

【0 0 3 6】

なお、ここでは第1の電極301を形成する陰極材料として120nm程度の膜厚で形成したAlを用いることとする（図3（B））。

【0037】

次に、第1の電極301上にバッファ層302が形成される。なお、バッファ層302を形成する材料としては、先に示した材料を組み合わせる用いることができるが、ここでは、図3（B）に示すように共役系高分子としてEB-PAniを用い、ドナー性高分子としてテトラチオフルバレン（以下、TTFと示す）を用い、20～50nm（好ましくは30nm）の膜厚で形成される。

【0038】

次に、バッファ層302上に電界発光膜303が形成される。電界発光膜303は、単一の材料で形成されていても良いが、複数の材料によって形成された積層構造としても良い。

【0039】

なお、積層構造の場合には、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層（ブロッキング層）、電子輸送層、電子注入層などの各機能を有する層を組み合わせ、少なくとも発光性を有する層を含む構成にすればよい。

【0040】

本実施の形態2では、図3（B）に示すように電界発光膜303を電子輸送層311、正孔輸送層312、および正孔注入層313との積層構造で形成することとする。具体的には、電子輸送層311は電子輸送性の材料であるAlq₃を50nmの膜厚とし、正孔輸送層312は正孔輸送性の材料であるα-NPDを30nmの膜厚とし、正孔注入層313は正孔輸送性の材料である銅フタロシアニン（以下、Cu-Pcと示す）を20nmの膜厚とすることにより形成する。なお、この積層構造の場合には、電子輸送層311を形成するAlq₃が発光性を有する。

【0041】

次に、電界発光膜303上に第2の電極304が形成される。なお、第2の電極304は陽極として機能する電極であるため仕事関数の大きい陽極材料（具体的には、仕事関数が4.0eV以上の材料）で形成される。なお、第2の電極3

04 は、単一の材料で形成された単層構造であっても良いが、複数の材料からなる積層構造で形成されていても良い。本実施の形態2では、図3(B)に示すように金(Au)を20nmの膜厚としたものを積層することにより第2の電極304が形成される場合について示す。なお、第2の電極304に用いる陽極材料としては、仕事関数の大きい公知の材料を自由に組み合わせて用いることができる。

【0042】

以上より、電界発光素子のバッファ層に、主鎖、または側鎖に共役を含む化合物（以下、共役系高分子という）と、ドナー性を有する一般式〔8〕で示される化合物、一般式〔9〕で示される化合物、一般式〔10〕で示される化合物、および一般式〔11〕で示される化合物のうちのいずれか一とを組み合わせた材料（電界発光素子用材料）を用いることにより、水を溶媒としないバッファ層を形成することができる。なお、このバッファ層を形成することにより電極（本実施の形態2では、陰極）からのキャリア（電子）の注入性が向上するため、素子の駆動電圧を低減させると共に信頼性の高い電界発光素子が形成される。

【0043】

（実施の形態3）

本実施の形態3では、本発明の電界発光素子についてその電気特性を測定した結果を示す。なお、測定に用いる電界発光素子の構造は、実施の形態1で説明したように陽極上にバッファ層が接して形成された構造とする。

【0044】

また、本発明の材料を用いて形成されたバッファ層を設けることによる効果を比較するために（1）バッファ層なしの場合、（2）バッファ層にCu-Pcを用いた場合、（3）本発明のバッファ層（EB-PAni+TCNQ）を有する場合の3通りの電界発光素子を作製し、その特性を測定した。

【0045】

上記3通りの素子としては、（1）バッファ層なしの場合には、ITO（20nm）（陽極）／ α -NPD（50nm）／Alq₃（50nm）／CaF（2nm）／Al（100nm）（陰極）の順に積層形成された素子を用い、（

2) バッファ層に Cu-Pc を用いた場合には、ITO (120 nm) (陽極) / Cu-Pc (20 nm) (バッファ層) / α -NPD (30 nm) / Alq₃ (50 nm) / CaF (2 nm) / Al (100 nm) (陰極) の順に積層形成された素子を用い、(3) 本発明のバッファ層 (EB-PAni+TCNQ) を有する場合には、ITO (120 nm) (陽極) / (EB-PAni+TCNQ) (30 nm 程度) (バッファ層) / α -NPD (30 nm) / Alq₃ (50 nm) / CaF (2 nm) / Al (100 nm) (陰極) の順に積層形成された素子をそれぞれ用いる。

【0046】

測定結果は、図4に示す通りであり、(3)の本発明のバッファ層を有する電界発光素子が最も駆動電圧が低いという結果が得られた。(2)に示すCu-Pcを用いた場合よりも駆動電圧が低いことは、(3)のバッファ層に導電性があること(アクセプターのドーピングによる)、さらに高分子膜で形成されることによる膜の平坦性等が起因しているものと思われる。

【0047】

【発明の効果】

本発明の電界発光素子用材料を用いることにより、従来の高分子系材料を用いてバッファ層を形成する場合と異なり、水を溶媒とすることなくバッファ層を形成することができる。なお、本発明の電界発光素子用材料を用いて形成された電界発光素子において、電極からのキャリアの注入性を向上させ、素子の駆動電圧を低減させると共に信頼性を高めることが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の電界発光素子について説明する図。

【図2】 陽極側にバッファ層を有する電界発光素子について説明する図。

【図3】 陰極側にバッファ層を有する電界発光素子について説明する図。

【図4】 電界発光素子の電気特性について測定した結果を示す図。

【符号の説明】

101 第1の電極

102 バッファ層

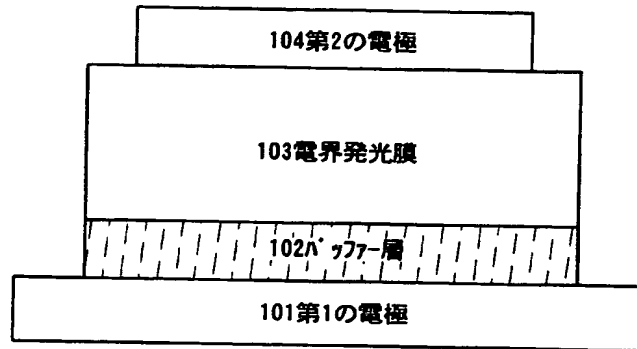
1 0 3 電界発光膜

1 0 4 第 2 の電極

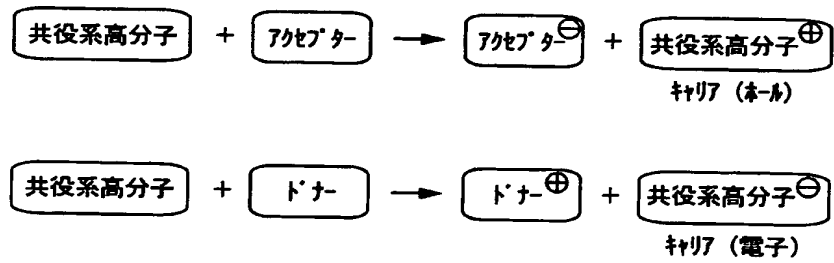
【書類名】 図面

【図 1】

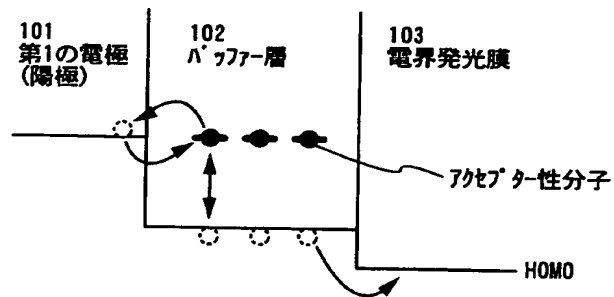
(A)



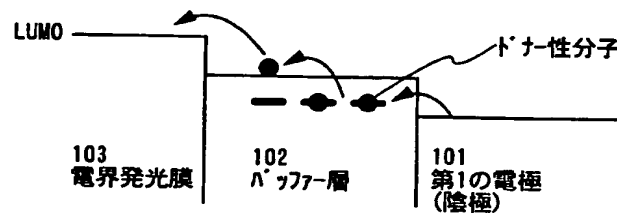
(B)



(C)

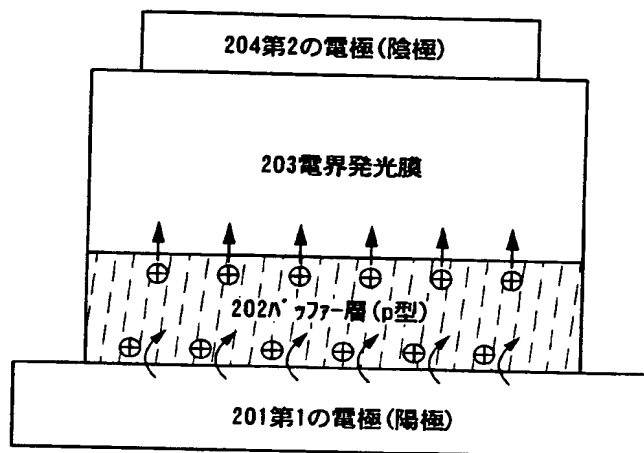


(D)



【図 2】

(A)

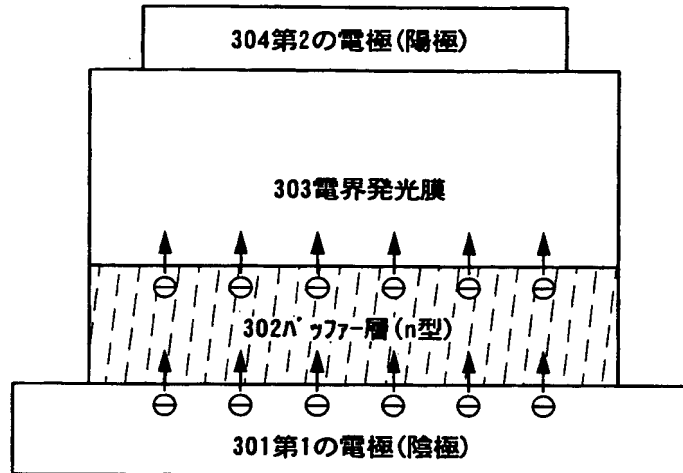


(B)

203 電界発光膜	204 第2の電極 (陰極)	Al (100nm)
		LiF (2nm)
	212 電子輸送層 (発光層)	Alq ₃ (50nm)
	211 正孔輸送層	α-NPD (30nm)
	202 p型層	EB-PAni+TCNQ (30nm)
	201 第1の電極 (陽極)	ITO (120nm)

【図 3】

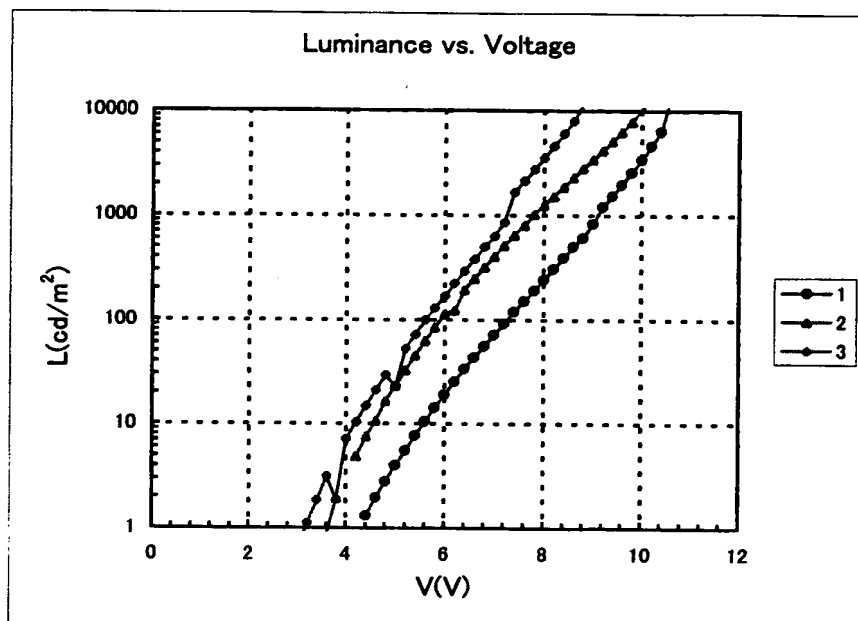
(A)



(B)

303 電界発光膜	304第2の電極(陽極)	Au (20nm)
	313正孔注入層	Cu-Pc (20nm)
	312正孔輸送層	α -NPD (30nm)
	311電子輸送層 (発光層)	Alq ₃ (50nm)
	302ハット層(n型)	EB-PAni+TTF (30nm)
	301第1の電極(陰極)	Al (120nm)

【図 4】



- 1 ITO / NPB / Alq / CaF / Al
- 2 ITO / CuPc / NPB / Alq / CaF / Al
- 3 ITO / PANI(EB)+TCNQ / NPB / Alq / CaF / Al

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来のバッファ層に用いた高分子系材料とは異なり、水を溶媒とせずにバッファ層を形成することができる電界発光素子用材料、およびそれを用いた電界発光素子を提供する。

【解決手段】 本発明では、図 1 (A) に示すような第 1 の電極 1 0 1、バッファ層 1 0 2、電界発光膜 1 0 3、および第 2 の電極を有する電界発光素子において、第 1 の電極 1 0 1 上に形成されるバッファ層 1 0 2 を形成する材料として有機溶媒に可溶な高分子系材料として主鎖、または側鎖に共役を含む高分子化合物（いわゆる共役系高分子）と、有機溶媒に可溶で、なおかつ前記高分子化合物に対してアクセプター性またはドナー性を有する化合物とを含む導電性の材料を用いる。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000153878]

1. 変更年月日 1990年 8月17日
[変更理由] 新規登録
住 所 神奈川県厚木市長谷398番地
氏 名 株式会社半導体エネルギー研究所